

单轴晶体锥面状非共线倍频辐射的研究

谷忠民 梁培辉 赵继然
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

研究锥面状倍频辐射的关键是相位匹配条件。本文利用折射率曲面相交的几何约束条件来代替非共线倍频的相位匹配条件,从而成功地给出了单轴晶体锥面状倍频辐射的起因、特征、变化规律、计算公式以及它们在测定晶体光轴、实时监测晶体主平面、实现共线倍频最佳化等方面的应用。

晶体倍频时往往同时出现锥面状与单束状倍频辐射现象,迄今为止对它的研究并不多^[1,2],而且均采用抽象的数学分析的方法。本文利用折射率曲面相交的几何约束条件代替非共线倍频的相位匹配条件,较为形象、直观地解释了有关现象。

一、折射率曲面相交法

入射端面处插入散射体能明显增强晶体锥面状倍频辐射,这表明这种倍频辐射的生成与晶体表面或内部的基波散射光有关,实际上它就是基波入射光束与基波散射光束在晶体内部所有可能的非共线相位匹配方向上和频的产物,如图1所示。利用文献[3]公式(21)建立非共线倍频的耦合波方程。在小信号近似下求解,可以得出这种倍频光强度的表达式为

$$I_2(L) = \frac{128 \pi^3 \omega^2 L^2 I_1 I_1'}{c^3 n_1 \cos \rho_1 \cdot n_1' \cos \rho_1' \cdot n_2 \cos \rho_2} \times |d_{\text{eff}}|^2 \text{sinc}^2 \left[\frac{\Delta K_2 \cdot L}{2} \right], \quad (1)$$

其中下标 1、2 表示基波、谐波,撇号表示散射光; ω 为基波的频率; c 是真空中光速; ρ 、 n 、 K 、 L 分别为光波在晶体中的走散角、折射率、波矢量以及各波耦合的长度。

从(1)式很容易推知晶体非共线倍频锥面状辐射(简称倍频锥)生成的必要条件是有效非线性系数 d_{eff} 不为零及相位失配 $\Delta K = K_1 + K_1' - K_2$ 为零。即

$$n_1(\psi) \mathbf{k}_1 + n_1'(\psi') \mathbf{k}_1' = 2 n_2(\theta) \mathbf{k}_2, \quad (2)$$

式中 ψ 、 ψ' 、 θ 和 \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_1' 、 \mathbf{k}_2 分别为 \mathbf{K} 、 \mathbf{K}_1' 、 \mathbf{K}_2 与晶体光轴 z 的夹角和对应的单位矢量。(2)式是研究倍频锥的

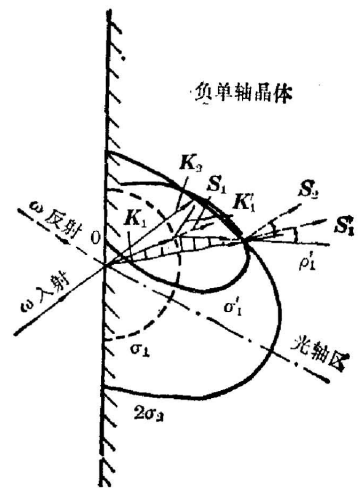


图1 锥面状倍频辐射的生成(其中 $\mathbf{K}_1 \sim n_1(\psi) \mathbf{k}_1$, $\mathbf{K}_1' \sim n_1'(\psi') \mathbf{k}_1'$, $\mathbf{K}_2 \sim 2 n_2(\theta) \mathbf{k}_2$, \mathbf{S} 为能量流矢量)
Fig 1 The occurrence of SHG cone ($\mathbf{K}_1 \sim n_1(\psi) \mathbf{k}_1$, $\mathbf{K}_1' \sim n_1'(\psi') \mathbf{k}_1'$, $\mathbf{K}_2 \sim 2 n_2(\theta) \mathbf{k}_2$, \mathbf{S} is Poynting vector)

关键,它可代之以形象直观的折射率曲面相交的几何约束条件。在晶轴坐标中(图 1),作出中心置于向径 $n_1(\psi)\mathbf{k}_1$ 矢端的基波散射光折射率曲面 σ'_1 ,再作出中心置于坐标原点 O 的且扩大一倍后的谐波折射率曲面 $2\sigma_2$,那么 σ'_1 与 $2\sigma_2$ 两者闭合交线上各点与原点相联后所确定的向径 $2n_2(\theta)\mathbf{k}_2$ 的全体就决定了非共线倍频只能以锥面形状进行辐射。在交线处非共线倍频的相位匹配条件(即(2)式)自动满足。

二、单轴晶体的倍频锥

图 2 给出了负单轴晶($n_o > n_e$)下的三种折射率曲面相交图,它表明负单轴晶可以生成 oo-e、eo-e、oe-e 三种类型的倍频锥,例如 KDP 晶体,其中 eo-e 锥表示非寻常光线的基波入射光与寻常光线的基波发射光一起生成了非寻常光的倍频锥。但 LiIO_3 晶体例外,只能生成 oo-e 型锥,因为它的 $d_{\text{eff}}(\text{eo-e}) = d_{\text{eff}}(\text{oe-e}) = 0$,仅 $d_{\text{eff}}(\text{oo-e}) \neq 0$ 。同理,正单轴晶体($n_o < n_e$)也可以生成三种锥分属 ee-o 型、oe-o 型和 eo-o 型。

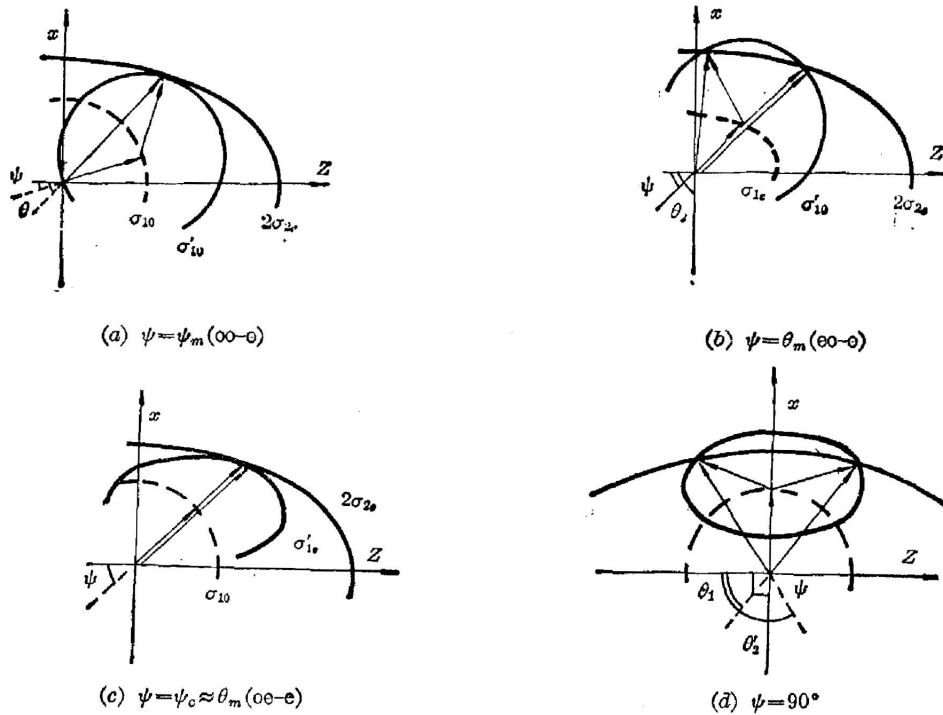


图 2 负单轴晶体三类倍频锥的折射率曲面相交图

Fig. 2 The figures for the cross-over of three types of SHG cone refractive-index surfaces in negative uniaxial crystals

从折射率曲面相交图(图 2)很容易推知单轴晶体倍频锥具有如下的特点、规律以及可能的应用。

(1) 倍频锥一般具有偏离基波入射光束的锥面状的结构,它们始终位于晶体光轴 Z 的某一侧。由此不难知道形成倍频锥的基波散射光强度是不均匀的,锥面诸倍频光束的强度也是不均匀的,锥面上强度越大的倍频束,其与基波入射束的夹角就越小、与光轴的夹角也

越小。这个特点在实验中可以直观地用来判断锥面上诸倍频束以及因其它光学效应而生成的各种光束,这在某些工作中证明是很有用的^[5]。鉴于单轴晶体寻常光和非寻常光折射率相差不大,可以认为非共线倍频锥都是些很好的近似圆锥。

(2) 在晶体中经过基波入射束的倍频锥的对称平面必定经过光轴及锥上光强的极值处。该特点可用作实时监视晶体的主平面。在晶体外正向屏上监视时要注意确保基波入射面与晶体主平面的重合,以免主平面被晶体出射面歪曲成锥的非对称面。

(3) 倍频锥的变化规律如下:基波入射束与晶体光轴的夹角 ψ (称基波入射角)从 90° 变化到 0° 时, σ_1' 与 $2\sigma_2$ 两曲面从相交、相切变成相离,对应的非共线倍频锥会从大变到小甚至“浓缩”成一束后再消失;锥中心线与基波入射束的夹角从零起不断增大;锥面与基波入射束则由相套、相合变到相离;相重合时,晶体处于完全的共线倍频的状态。应用后一特点,在调节晶体(控温或转动)时很容易实现共线倍频的最佳化。

(4) ψ_c 与 θ_m 是描写倍频锥变化规律的两个重要参数。 σ_1' 与 $2\sigma_2$ 相切时,倍频锥恰好生成,这时的基波入射角称作起锥角 ψ_c 。锥面与基波入射束重合时晶体达到完全共线倍频的状态,此时基波入射角称为共线倍频相位匹配角 θ_m 。利用折射率曲面相交图可以证明单轴晶体各类锥的 ψ_c , θ_m 满足下列关系式:

$$\psi_c(\text{oo-e}) < \psi_c(\text{eo-e}) < \psi_c(\text{oe-e}) \cong \theta_m(\text{oe-e}), \quad (3)$$

$$\psi_c(\text{ee-o}) < \psi_c(\text{oe-o}) < \psi_c(\text{eo-o}) \cong \theta_m(\text{eo-o}), \quad (4)$$

上述两式表明单轴晶体三种锥并不能始终同时产生并达到足够的可供观察的强度。以负单轴晶为例,oe-e锥在晶体共线倍频II类相位匹配角附近起锥。只有 $\psi \geq \theta_m(\text{oe-e})$ 时,oe-e锥方能出现。而此时eo-e锥早已出现,且其锥角半径有了一定的大小,oo-e锥出现得更早,其锥角半径就更大。但此时参与该锥生成的基波散射光很弱,非共线倍频各波耦合长度又很短,因此这时候的oo-e锥强度很弱,难以观察到。 ψ 再增大,起初为小锥的oe-e其锥角半径的增长速度明显地超过起初为大锥的eo-e的速度。 ψ 大到一定值之后,oe-e锥就能大于eo-e锥。正单轴晶体也有类似的情况。

在晶轴坐标中,列出 σ_1' 与 $2\sigma_2$ 的曲面方程,换用球坐标 r, θ, φ ,联立后去掉长度量 r 并经过化简就可推得非共线倍频光传播方位角 θ, φ 的数值计算公式。以负单轴晶为例,利用图2可求得这些公式为

$$\text{oo-e 锥: } n_{2e}(\theta) = n_{10} \cos \Delta, \quad (5)$$

$$\text{oe-e 锥: } 2n_{2e}(\theta) = n_{10}^2(\theta) \{n_{10} N^{-2} + n_{10} [N^{-4} - n_{10}^{-2}(\theta) \sin^2 \psi (n_{1e}^{-2} - n_{10}^{-2})^{1/2}]\}, \quad (6)$$

$$\text{eo-e 锥: } 2n_{2e}(\theta) = n_{1e}(\psi) \cos \Delta + \{[n_{1e}(\psi) \cos \Delta]^2 + n_{10}^2 - n_{1e}^2(\psi)\}^{1/2}, \quad (7)$$

其中 θ, ψ, Δ 分别表示 \mathbf{k}_2 与 z 轴, \mathbf{k}_2 与 x 轴, \mathbf{k}_1 与 \mathbf{k}_2 之间的夹角。 $\Delta, n_{1e}(\theta), N$ 由下列等式来确定

$$\cos \Delta = \cos \varphi \cdot \cos \theta \sin \psi + \cos \theta \cos \psi, \quad (8)$$

$$n_{1e}(\theta) = [(\sin^2 \theta / n_{1e}^2) + (\cos^2 \theta / n_{10}^2)]^{-1/2}, \quad (i=1, 2) \quad (9)$$

$$N = [(\sin \theta \cos \varphi \sin \psi / n_{1e}^2) + (\cos \theta \cos \psi / n_{10}^2)]^{-1/2}. \quad (10)$$

基波入射角 ψ 值固定时,超越方程(5)~(7)式若有解,则所有可能的 θ, φ 值对所确定的向径的全体就组成了非共线倍频辐射锥面;若无解,则无锥生成。以 $(-\varphi)$ 取代 φ , (5)~(7)式不变,这表明倍频锥具有 $\varphi=0$ 的对称平面,即主平面 xz 对(5)~(7)式作某些近似可进一步给

出锥角半径,起锥角,锥角中心线与基波入射束夹角等的显式^[2]。

利用文献[6]的折射率值,在 TQ-16 计算机上我们具体算出了 $1.064\ \mu\text{m}$ 基波光入射时的 LiIO_3 晶体 oo-e 锥的波矢方位角 θ , φ 值。根据计算结果画出了该锥在主平面上的 ψ - θ 曲线呈 U 型 (如图 3)。从 U 曲线同样可给出倍频锥的一些特征及规律来。计算结果表明 $1.064\ \mu\text{m}$ 下 LiIO_3 的 $\psi_0(\text{oo-e}) = 27.522^\circ$, 此时 $\theta_0 = 31.915^\circ$ 。实验中只要测定锥面上倍频束与基波入射束之间最小夹角,利用 U 曲线及 (5) 式就可求得对应的基波的入射角 ψ 值、主平面上的锥光束以及因其它光学效应产生的在主平面上的各种光束它们相对光轴的各个夹角值^[5]。

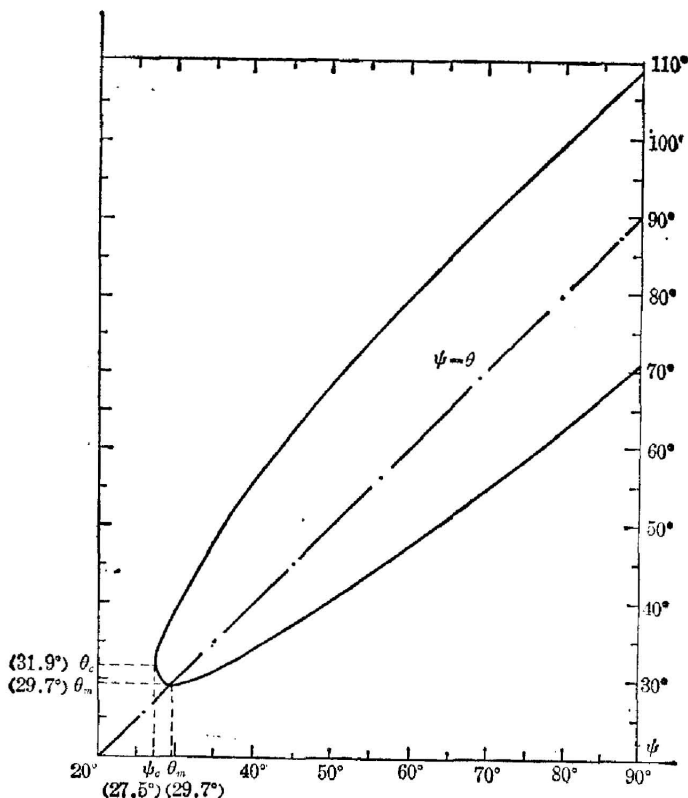


图 3 基波波长为 $1.064\ \mu\text{m}$ 时的 LiIO_3 晶体 oo-e 型倍频锥的 ψ - θ 曲线
 Fig. 3 The ψ - θ curve of type oo-e SHG cone in a LiIO_3 as fundamental wavelength is $1.064\ \mu\text{m}$

三、实验结果与分析

利用倍频锥还能对晶体光轴进行测定,其优点是简单、易行,即使晶体遭到某种程度的损伤,例如表面或内部出现伤斑、裂纹、气泡等时,该法仍然可用。具体测定的装置如图 4 所示。

转动晶体使倍频锥浓缩成一束处于消失产生的转折点时,光轴与晶面法线的夹角就由下式来确定

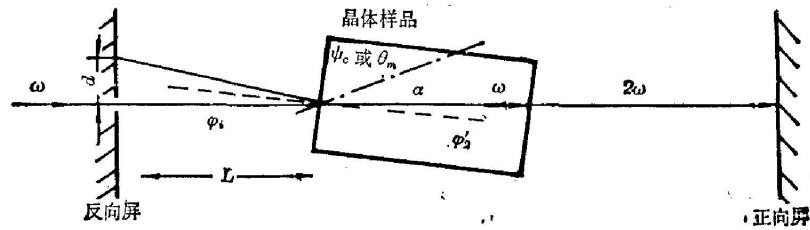


图 4 测定晶体光轴的装置

Fig. 4 The arrangement for determining crystal optics axis

$$\alpha = \psi_0 + \psi'_0 = \psi_0 + \sin^{-1}\{\sin[0.5 \operatorname{tg}^{-1}(d/L)]/n_1(\psi_0)\}, \quad (11)$$

转动晶体使晶体处于完全共线倍频状态, 此时倍频锥面与基波入射束完全重合, 同样可得到

$$\alpha = \theta_m + \sin^{-1}\{\sin[0.5 \operatorname{tg}^{-1}(d/L)]/n_1(\theta_m)\}. \quad (12)$$

实验时, 让正向观察屏上倍频环的极值点所在直线通过基波光点, 即使得主平面与入射面重合。测量 d, L (如图 4 所示), $\psi_0, \theta_m, n_1(\psi_0)$ 可由折射率表及倍频锥计算公式给出。然后利用 (11), (12) 式可求得 α 值。

实验测定时使用一台重复频率达 10 Hz 的 Nd:YAG 被动锁模激光器, 其输出为 $1.064 \mu\text{m}$ 的超短激光脉冲序列作基波入射光, 对一块按 $\alpha = 30^\circ$ 角制作的 LiIO_3 晶体样品进行了光轴的复测。其中 $n_1(\psi_0) = n_1(\theta_m) = n_{10} \cong 1.8599, \psi_0(00-e) = 27.522^\circ, \theta_m(00-e) = 29.682^\circ$, 测量结果为 (见表 1) $\bar{\alpha} = 30.04^\circ \pm 0.04^\circ$ 。

表 1 LiIO_3 晶体光轴测定时的数据与结果

Table 1 The experimental data and results of determining the optics axis in a crystal sample LiIO_3

测量方法	编号	数据: $L(\text{mm})$	$d(\text{mm})$	$\alpha_i(^\circ)$
倍频锥刚好出现	1	672.5	116.0	30.039
倍频锥刚好出现	2	1104.5	187.5	30.110
完全共线倍频	3	672.5	15.0	30.026
完全共线倍频	4	1104.5	22.5	30.000
测量结果	$\bar{\alpha} = \sum(\alpha_i/4) = 30.04^\circ; \sqrt{\sum(\alpha_i - 2)^2/4} = 0.04^\circ$			

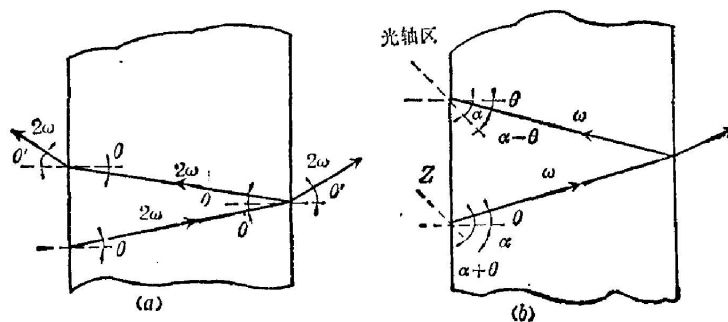


图 5 后向倍频锥形成的原因

Fig. 5 Illustration for explaining the backward SHG cones may occur

利用上述器件的输出,对同一块 LiIO_3 及另一块专供 $1.06 \mu\text{m}$ 光 II 类共线倍频用的 KDP 晶体样品作了负单轴晶倍频锥实验研究。结果完全证实了折射率曲面相交法所推出的单轴晶体倍频锥的上述各项特征及其变化规律(如图 5 所示)。

实验发现 KDP, LiIO_3 在正向出现倍频锥的同时,在反向也能产生两种性质不同的倍频锥。其中光很弱的那种锥其变化规律与正向锥相同,两者同时形成或消失并且同时变大或变小,它们相对于晶体通光表面呈现映像的对称关系。从图 6(a)不难知道,这种后向锥来自正向锥在晶体出射界面处的后向反射, LiIO_3 晶面的这种法向内反射率可高达 10% 左右。另一种光较强的锥其变化规律恰恰与正向锥完全相反。正向锥形成并增大时,反向锥却缩小并消失;正向锥缩小并消失时,后向锥却形成并增大。这种后向锥实质是晶体出射界面处对入射基波束反射所产生的后向基波束在反方向进行非共线倍频的产物(图 6(b))。如果入射角为 $\alpha \pm \theta$ 的基波束产生正向锥时,则反射的基波束以 $\alpha \mp \theta$ 的入射角产生后向锥。这种正反向基波束入射角变化的相反性导致相应的正反向倍频锥变化规律的相反性。

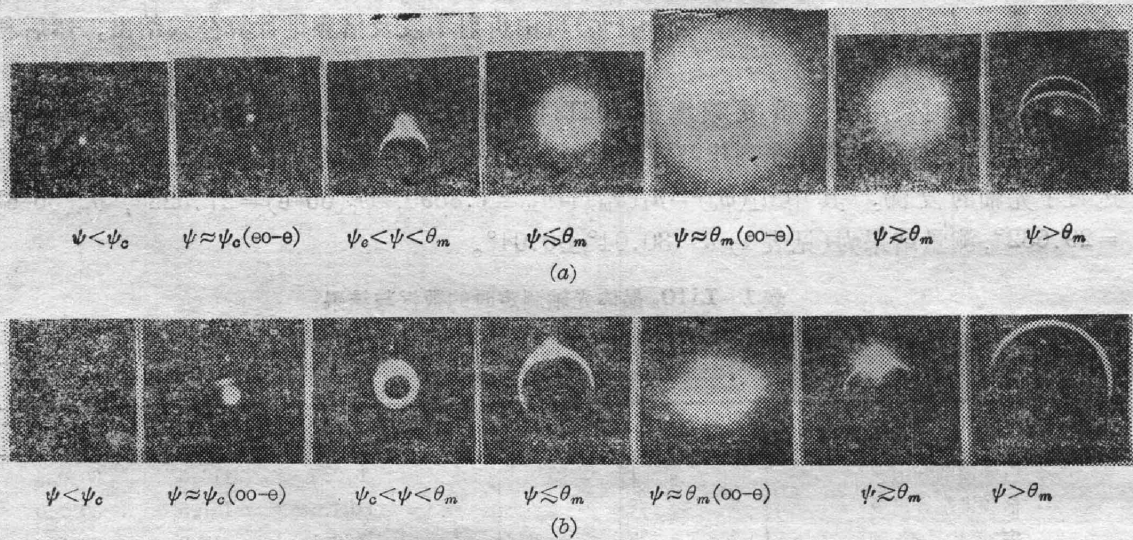


图 6 倍频锥在正向屏上的场图

Fig. 6 The patterns of SHG cones on the front screen

(a) type eo-e and type oo-e cones of crystal KDP; (b) type oo-e cones of crystal LiIO_3

参 考 文 献

- [1] J. A. Giordmaine; *Phys. Rev. Lett.*, 1962, **8**, No. 1 (Jan), 19.
- [2] R. Trebino; *Appl. Opt.*, 1981, **20**, No. 12 (Jun), 2090.
- [3] J. A. Giordmaine, W. Kaiser; *Phys. Rev.*, 1966, **144**, No. 2 (Apr), 676.
- [4] 李荫远, 杨顺华编;《非线性光学》, (科学出版社, 1974), 32.
- [5] 梁培辉等;《光学学报》, 1983, **3**, No. 4 (Jul), 289.
- [6] G. Nath, S. Hanssihl; *Appl. Phys. Lett.*, 1969, **14**, No. 5 (Mar), 154.

Research on noncollinear second-harmonic-generation cones in uniaxial crystals

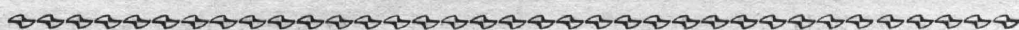
GU ZHONGMIN LIANG PEIHUI AND ZAO JIRAN

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 4 May 1984; revised 10 September 1984)

Abstract

The key of the research on SHG cones is its phase-matching condition. By way of substituting the phase-matching of noncollinear SHG for the cross-over of its correspondent refractive-index surfaces, we have successfully given the characteristics of SHG cones in uniaxial crystals, the reason for its occurrence, its change-rule, its relevant formulations, and its application such as determining crystals optics axis, monitoring crystal's main-plane, and realizing the optimization of crystal collinear SHG.



著名的光谱物理学家高兆兰教授



高兆兰教授投身于我国科学教育事业将届 50 年,桃李天下,英华佼佼。以其渊博的专业知识、严谨的治学精神和对后辈的热情扶掖而著称于我国科技教育界。她是新中国光学光谱学教学与研究的最早开拓者之一。

高兆兰教授 1914 年生于云南省昆明市。1929 年毕业于东陆大学(现云南大学)预科。1930 年考入岭南大学物理系,并于 1934 年以优异成绩及毕业论文“国产几种染料与药物苏木、黄枝等的吸收光谱”获得学士学位。随后留校进入岭南大学研究院。1936 年,以稳压电路的研究论文获得了硕士学位。同年加入了中国物理学会。

抗战爆发后,岭南大学暂迁香港复课,高兆兰教授任该校物理系讲师。1940 年,获东方妇女奖金(巴伯奖金)赴当时世界红外光谱与红外物理中心的美国密西根大学物理系深造。1942 年,高教授及其导师研制成功最早期的记录式红外分光光度计,发表了这个领域中深有影响的研究论文。1944 年春,以“二氟甲烷与三氟甲烷的红外吸收光谱研究”的论文获得博士学位。并先后被选为美国两个荣誉学会(西格马·克西和斐·贝塔·卡帕)的会员。1944 年春,高教授受聘于美国锐提安公司研究部任研究员,从事气体放电及雷达 X 波段开关管的研制,并获得成功。

抗战胜利后,出于对祖国的热爱和对振兴中华科技的炽烈愿望,高兆兰教授和她的爱人冯秉铨教授(当时任教于哈佛大学,讲授无线电雷达课)于 1946 年夏乘第二次大战后首批客运海轮从美国回到广州。在岭南大学物理系先后担任副教授、教授,专注于分子光谱学、光学的教学与研究,并培养光谱学研究生。

解放后,1952 年院系调整时转入中山大学物理系,在教育部与校党委领导下,高兆兰教授投身于我国最早的一批光学光谱学专业教学单位的创建工作,且一直主持光学教研室。五十年代带领青年教师们开展了发射光谱及喇曼散射光谱光电技术设备的研制,并对一系列有机分子进行喇曼光谱分析。六十年代,指导

(下转 141 页)